

PCT

世界知的所有権機関
国際事務局

特許協力条約に基づいて公開された国際出願



(51) 国際特許分類7 A01N 25/12, 25/34, 25/16, 25/00		A1	(11) 国際公開番号 WO00/40085
			(43) 国際公開日 2000年7月13日(13.07.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP99/07341		(22) 国際出願日 1999年12月27日(27.12.99)	
(30) 優先権データ			
特願平11/2008	1999年1月7日(07.01.99)	JP	
特願平11/180342	1999年6月25日(25.06.99)	JP	
特願平11/186556	1999年6月30日(30.06.99)	JP	
特願平11/267331	1999年9月21日(21.09.99)	JP	
特願平11/273616	1999年9月28日(28.09.99)	JP	
(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 石原産業株式会社 (ISHIHARA SANGYO KAISHA, LTD.) [JP/JP] 〒550-0002 大阪府大阪市西区江戸堀一丁目3番15号 Osaka, (JP)		(81) 指定国 AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), ARIPO特許 (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM)	
(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 横山昌雄(YOKOYAMA, Masao) [JP/JP] 〒110-0002 東京都台東区上野桜木2丁目3番3号 Tokyo, (JP) 濱村謙史朗(HAMAMURA, Kenshiro) [JP/JP] 〒270-2254 千葉県松戸市河原塚211番地の139 Chiba, (JP)		(74) 代理人 弁理士 水野昭宣(MIZUNO, Akinobu) 〒150-0044 東京都渋谷区円山町22番12 ライオンズマンション渋谷道玄坂303 Tokyo, (JP)	
		添付公開書類 国際調査報告書	
(54) Title: FLOATING PESTICIDE COMPOSITIONS FOR PADDY FIELDS, METHOD FOR THE UTILIZATION THEREOF AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME			
(54) 発明の名称 水田用水面浮遊性農薬組成物、その使用方法及びその製造方法			
(57) Abstract Labor-saving floating pesticide compositions which are directly applied to paddy fields. These compositions are characterized by containing, in addition to the active pesticidal ingredient and a surfactant: (1) a carbonate and a solid acid and having bubbles and/or concaves therein; (2) an enclosed hollow matter having a bulk density less than 1; or (3) an enclosed hollow matter having a bulk density less than 1, a binder and a disintegrating agent; and having a composition density less than 1 g/cm ³ . When poured into a paddy field filled with water, these compositions float on the water face and release the active pesticidal ingredient, thereby showing characteristics of exerting uniform pesticidal effect while giving no chemical treatment trace on the soil surface at the application point.			

BEST AVAILABLE COPY

(57)要約

水田に直接施用する省力型の水面浮遊性農薬組成物を提供する。該農薬組成物は、農薬活性成分、界面活性剤に、更に、(1)炭酸塩及び固体酸を含有するものであって、組成物中に気泡及び／又は凹部を有するか、(2)嵩比重が1未満の閉鎖型中空体を含有するか、あるいは(3)嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有し、該組成物の密度が1 g/cm³ 未満であることを特徴とする。該農薬組成物は、湛水下水田に投入後水面に浮遊し、農薬活性成分を拡散し、投入地点の土壌表面には薬剤処理跡が残らず、薬効の偏りが無いという特性を示す。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサオ		共和国	TT	トリニダッド・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	ML	マリ	TZ	タンザニア
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CH	スイス	IE	アイルランド	MW	マラウイ	US	米国
CI	コートジボワール	IL	イスラエル	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CM	カメルーン	IN	インド	MZ	モザンビーク	VN	ベトナム
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラヴィア
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CZ	チェコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

明 細 書

水田用水面浮遊性農薬組成物、その使用方法及びその製造方法

技術分野

本発明は、特に水田に直接施用する、省力型の水面浮遊性農薬組成物に関する。

背景技術

近年、水田に入らず散布することができる農薬組成物が数多く提案されているが、それらの多くは水田に散布した際に土壌表面に沈降する。この場合、薬効面において投入地点とそこから離れた地点とでは効果に差があることが観察されるだけでなく、薬剤の処理地点付近にその痕跡が残ったり、農薬活性成分が局所に残留するなどの問題を含んでいる。このような問題を解決する試みが特開平5-139906号公報にみられる。該公報には、農薬活性成分、炭酸塩、水溶性固体酸および無機浮遊性物質を含有する固体状組成物からなることを特徴とする水面施用発泡性農薬製剤が記載されており、該無機浮遊性物質は、水面に投下した時、それ自体が水面に浮遊するパーライトやシラスバルーンなどであるとしている。

しかしながら、上記技術で用いられているパーライトやシラスバルーンなどは、水面に施用した直後は浮遊するが、これらのものは短時間で水中に沈んでしまい、所期の目的が十分に達成出来ないといった問題点を依然として含んでいる。また、従来から提案されている水田直接施用型の農薬組成物の1つである錠剤農薬組成物においては、その製造方法の主流が、高圧で圧縮し、成型する方法である為、大規模な専用施設が必要であり、製造コスト面で十分満足されていない。

発明の開示

本発明者らは、これらの問題点を解決すべく鋭意検討し、本発明を完成させた。本発明は、特に水田に直接施用する、省力型の水面浮遊性農薬組成物（以下

単に「農薬組成物」と略す)を提供する。すなわち、本発明は、農薬活性成分、界面活性剤に、更に、(1)炭酸塩及び固体酸を含有する組成物中に気泡及び／又は凹部を有するか、(2)嵩比重が1未満の閉鎖型中空体を含有するか、又は(3)嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有する水面浮遊性農薬組成物、特に水田用水面浮遊性農薬組成物に関する。また、本発明は、前記農薬組成物を、湛水下水田に直接施用する方法にも関する。

本発明は、農薬活性成分、界面活性剤を含有する水田用水面浮遊性農薬組成物であって、更に、(1)炭酸塩及び固体酸を含有する組成物中に気泡及び／又は凹部を有するか、(2)嵩比重が1未満の閉鎖型中空体を含有するか、又は(3)嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有する農薬組成物に関するものである。該農薬組成物は、水溶性フィルムで覆い、バック剤としても使用できる。

本発明は、第二に前記した農薬組成物を湛水下水田に直接施用する方法、より具体的には、前記した農薬組成物を湛水下水田に直接施用し、有害生物を防除する方法に関し、施用方法は、農薬組成物を湛水下水田に投げ込む方法や、入水時に水口或いは給水筒へ施用する方法などを適宜選択できる。該水田施用は、田植え前、田植え後のいずれであってもよい。

本発明は、第三に農薬活性成分、界面活性剤、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有し、密度が 1 g/cm^3 未満である水田用水面浮遊性錠剤農薬組成物の製造方法であって、錠剤化時の錠剤化機器による加圧度が $1\sim 150\text{ kg/cm}^2$ であることを特徴とする方法に関する。該製造方法は、高圧での圧縮成型を伴わないので、製造コストを低く抑えられる。

別の態様では、本発明は、農薬活性成分、界面活性剤及び嵩比重が1未満の閉鎖型中空体を含有することを特徴とする水田用水面浮遊性粒状農薬組成物を提供する。好ましくは該水田用水面浮遊性粒状農薬組成物は自己拡散型のものである。また、本発明は、該粒状農薬組成物の製造方法を提供し、さらに該粒状農薬組成物を、湛水下水田に直接施用する方法をも提供する。

さらに別の態様では、本発明は、農薬活性成分、界面活性剤、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有し、該配合物の密度が 1 g/cm^3 未

満であることを特徴とする水田用水面浮遊性錠剤農薬組成物を提供する。また、本発明は、該錠剤農薬組成物を、湛水下水田に直接施用する方法をも提供する。

本発明のその他の目的、特徴、優秀性及びその有する観点は、以下の記載より当業者にとっては明白であろう。しかしながら、以下の記載及び具体的な実施例等の記載を含めた本件明細書の記載は本発明の好ましい態様を示すものであり、説明のためにのみ示されているものであることを理解されたい。本明細書に開示した本発明の意図及び範囲内で、種々の変化及び／又は改変（あるいは修飾）をなすことは、以下の記載及び本明細書のその他の部分からの知識により、当業者には容易に明らかであろう。

本明細書において、用語「及び／又は」とは、(1)併合的接続関係と(2)選択的接続関係の両方が存在することを意味しており、例えば「気泡及び／又は凹部」の場合では(1)気泡及び凹部並びに(2)気泡又は凹部の両方を包含する意味で使用されている。その他においても用語「及び／又は」は同様に(1)併合的接続関係と(2)選択的接続関係の両方を包含する意味で使用されている。

発明を実施するための最良の形態

本発明の農薬組成物は、通常、医薬分野や農薬分野で実施される方法或はそれに準じた方法により製造される。

本発明の農薬組成物の中、組成物中に気泡及び／又は凹部を有するものは、農薬活性成分、界面活性剤、炭酸塩及び固体酸、並びに所望により結合剤と、水又は含水物質とを混合し、炭酸塩及び固体酸を部分的に反応させて炭酸ガスを発生させつつ型枠容器に充填するか、或いは前記成分と水又は含水物質とを混合し、型枠容器に充填した後、炭酸塩及び固体酸を部分的に反応させて炭酸ガスを発生させることにより、該炭酸ガス及び／又は空気を主に含む気泡及び／又は凹部を有する農薬組成物として製造されるが、その製造過程中的任意の段階で適宜加熱を伴って製造することもできる。加熱を伴うことにより種々の利点をもたらされる。例えば①炭酸ガスの発生を促進できる、②気泡に含まれている炭酸ガス及び／又は空気の体積を膨張させ、農薬組成物の浮遊性をより向上させることができる、③農薬組成物の強度を向上させることができる、④農薬組成物を効率的に

乾燥することができる等の利点があげられる。加熱を伴った際は、農薬組成物を適宜放冷又は冷却する。また、本発明においては、製造過程において農薬組成物を乾燥してもよいが、その条件は、常温下又は加熱下を適宜選択でき、常圧下又は減圧下も適宜選択できる。なお、農薬組成物中に含まれる空気は、本発明の農薬組成物の製造段階、例えば混合、加熱、放冷、冷却、乾燥等の段階において含まれたり、本発明の農薬組成物の製造段階、製造後又は保管時等において、炭酸塩及び固体酸の反応により発生した炭酸ガスと置換される形で含まれたりする。

なお、前記含水物質（水が均一に分散されている媒体）を用いることは、微量の水を効率的に炭酸塩及び固体酸と反応させる上で有効に用いられる手段の一つである。本発明で用いる含水物質としては、有機溶媒、高分子化合物等をあげることができるが、含水物質は、予め水分を含む形態で供給されているものであっても、使用時に水分を添加したものであってもよい。

また、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体を含有する農薬組成物は、農薬活性成分、界面活性剤、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、必要があれば担体、結合剤、物理性改良剤、安定化剤、崩壊剤などの補助剤を混合して、当該分野における通常の方法により製造できる。

粒状農薬組成物の場合、上記混合物を加水混練して押し出し造粒機を用いて造粒後、乾燥整粒する。また、粉体混合物に加水しながら、転動造粒機にて造粒し乾燥、整粒してもよい。さらに粉体混合物を水に分散させ噴霧造粒機を用いて造粒（必要に応じ整粒）、してもよいし、粉体混合物を流動させながら、農薬活性成分、界面活性剤、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、必要があれば担体、結合剤、物理性改良剤、安定化剤などをスプレーして造粒する流動層造粒機によって製造し、整粒してもよい。整粒された個々の粒の粒径は、取り扱いの便宜、組成物の崩壊性を考慮すると一般的には0.1～10mm、好ましくは0.3～6mm、さらに好ましくは0.3～2mmの範囲である。また、粒1個当たり重量は1g未満である。

錠剤農薬組成物の場合、農薬活性成分と界面活性剤と崩壊剤とを混合するか、または、界面活性剤と崩壊剤を予め混合しておいたものと農薬活性成分とを混合し、それらの粒径を1～200 μ mに粉碎し、これに嵩比重が1未満の閉鎖型中空体及び結合剤を加え打錠機、もしくは、ブリケットマシンを用いて成型する。この場合、

錠剤農薬組成物に対して、水に浮遊する性質を持たせるため、製品密度が 1 g/cm^3 未満になるよう加圧度を適宜調整する。加圧度は、製造機器(錠剤化機器)により異なるが $1\text{ kg/cm}^2 \sim 150\text{ kg/cm}^2$ が好ましく、更に望ましくは $20\text{ kg/cm}^2 \sim 100\text{ kg/cm}^2$ であり、製造された錠剤農薬組成物の製品密度は $0.3 \sim 0.99\text{ g/cm}^3$ 、望ましくは $0.8 \sim 0.95\text{ g/cm}^3$ であることが好ましい。

本発明で製造される錠剤農薬組成物とは、種々の形状のものを包含し、例えば、タブレット状、球、円柱、直方体、立方体、卵状、7-mond状、炭団状、ドーナツ状、レンズ状、釣り鐘状、円形板状、長円形板状、角形板状、棒状、楕円球などであってもよいが、浮遊性、取扱い性等を考慮すると、タブレット、7-mond状、炭団状、レンズ状やブリケット等の塊状形状のものが好ましい。

形状によって薬効が大きく影響されるものでないので、いずれの形状、大きさ、重量のものであってもよいが、例えば形状がタブレット状である場合は、1個当りの大きさが直径 $1\text{ cm} \sim 7\text{ cm}$ 、厚さ $1\text{ cm} \sim 5\text{ cm}$ 、重さ $1\text{ g} \sim 110\text{ g}$ のものが製造上、薬剤施用上好ましい。その他の形状のものは、タブレット状のものと同程度に成型する。重過ぎると土中に埋まったり、十分な拡張がみられなかったりし、また、軽過ぎると生産性や小分け性或いは散布作業の省力化への貢献性が低下する。

組成物中に気泡及び/又は凹部を有する本発明の農薬組成物は、組成物中に気泡(水分の存在下で炭酸塩及び固体酸を部分的に反応させることにより発生させた炭酸ガス及び/又は該炭酸ガスを置換した空気を主に含む)及び/又は凹部を有しており、それと同時に、炭酸塩及び固体酸の残部と田水との反応により発泡(炭酸ガスを発生)することから、通常湛水下水田に施用されると水面に浮遊する。しかも本発明の農薬組成物は、組成物中に気泡及び/又は凹部を有することから、田水との接触面積が大きく、結果的に炭酸ガスの発生が助長され、農薬組成物が広範囲にわたって浮遊するので、農薬成分を水田全域により効率良く拡散させることができる。

また、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体を含有する本発明の農薬組成物は、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体が包含されているので、水田に施用された際、水面に浮遊し、界面活性剤の効力が中心となって農薬活性成分を極めて効果的に水田全

域に拡散させることができる。なお、本発明の農薬組成物、特に粒状農薬組成物をバック剤として施用すると、そのバルク密度によっては一旦水中に沈む場合があるが、そのような場合であっても嵩比重が1未満の閉鎖型中空体が包含されているので、バック剤自体がその後水面に浮遊するか、或いはバック剤から放出された農薬組成物が水面に浮遊し、上記同様所望の効果を達成することができる。

さらに、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有する本発明の農薬組成物は、組成物中に閉鎖型中空体を含有していることから、湛水下水田に施用されると水面に浮遊する。また、それと同時に崩壊剤により水面に浮遊した農薬組成物は崩壊していく。本発明の農薬組成物は、浮遊と同時に崩壊して行き、界面活性剤で農薬組成物が広範囲にわたって浮遊するので、農薬活性成分を水田全域により効率良く拡散させることができる。

すなわち、本発明の農薬組成物は局所散布するだけで、農薬活性成分が局所に残留することなく水田全域に拡散し、イネに対する薬害を発生することなく有害生物を防除することができる、散布作業が大幅に省力化された農薬組成物である。また、浮遊性に優れた本発明の農薬組成物は、農薬活性成分が全て田水に溶解乃至効率良く拡散する為、薬剤の処理地点にその痕跡が残らないという利点も有する。さらに本発明の農薬組成物は、前記したように簡便な方法で製造でき、特に錠剤農薬組成物の場合、従来技術のように、特別な施設を要する高圧での圧縮成型を必要としないので、製造コストも低く抑えられる。このように、種々の特徴、利点を有する本発明の農薬組成物は、極めて実用性の高いものである。

本発明の農薬組成物で用いる農薬活性成分としては、除草剤有効成分、植物成長調整剤有効成分、殺菌剤有効成分、殺虫剤有効成分があげられる。これらにつき、以下に例示するが、本発明における農薬活性成分は、これらに限定されない。なお、特に記載がない場合であってもこれら有効成分化合物に塩、アルキルエステル等が存在する場合は、当然それらも含まれる。

除草剤有効成分としては、例えばS-(4-クロロベンジル)-N,N-ジエチルチオカーバメート〔一般名：ベンチオカーブ〕等のカーバメート系有効成分；1-(α , α -ジメチルベンジル)-3-(パラトリル)尿素〔一般名：ダイムロン〕等の尿素系有効成分；2-クロロ-N-エトキシメチル-6-エチル

アセト-0-トルイダイド〔一般名：アセトクロール〕、2-クロロ-2', 6'-ジエチル-N-(ブトキシメチル)アセトアニリド〔一般名：ブタクロール〕、2-クロロ-N-(3-メトキシ-2-テニル)-2', 6'-ジメチルアセトアニリド〔一般名：テニルクロール〕、2-クロロ-2', 6'-ジエチル-N-(2-プロポキシエチル)アセトアニリド〔一般名：プレチラクロール〕、(RS)-2-ブロモ-N-(α , α -ジメチルベンジル)-3, 3'-ジメチルブチルアミド〔一般名：プロモブチド〕等のアミド系有効成分；2, 4-ジクロロフェノキシ酢酸〔一般名：2, 4-D〕、2-メチル-4-クロロフェノキシ酢酸〔一般名：MCP〕、2-メチル-4-クロロフェノキシ酪酸〔一般名：MCPB〕等のフェノキシ系有効成分；2-[4-(2, 4-ジクロロベンゾイル)-1, 3-ジメチルピラゾール-5-イルオキシ]アセトフェノン〔一般名：ピラゾキシフェン〕、4-(2, 4-ジクロロベンゾイル)-1, 3-ジメチル-5-ピラゾリル-p-トルエンスルホネート〔一般名：ピラゾレート〕、2-[4-(2, 4-ジクロロ-m-トルオイル)-1, 3-ジメトキシピラゾール-5-イルオキシ]-4'-メチルアセトフェノン〔一般名：ベンゾフェナップ〕等のピラゾール系有効成分；2-メチルチオ-4, 6-ビス(エチルアミノ)-s-トリアジン〔一般名：シメトリン〕、2-メチルチオ-4-エチルアミノ-6-(1, 2-ジメチルプロピルアミノ)-s-トリアジン〔一般名：ジメタメトリン〕等のトリアジン系有効成分；5-(2, 4-ジクロロフェノキシ)-2-ニトロアニソール〔一般名：クロメトキシフェン〕、5-(2, 4-ジクロロフェノキシ)-2-ニトロ安息香酸メチル〔一般名：ビフェノックス〕等のジフェニルエーテル系有効成分；2-アミノ-3-クロロ-1, 4-ナフトキノ〔一般名：ACN〕、(RS)-2-[2-(3-クロロフェニル)-2, 3-エポキシプロピル]-2-エチルインダン-1, 3-ジオン〔一般名：インダノファン〕等の縮合環系有効成分；O, O-ジイソプロピル-2-(ベンゼンスルホンアミド)エチルジチオホスフェート〔一般名：SAP〕等のリン系有効成分；N-(1-エチルプロピル)-3, 4-ジメチル-2, 6-ジニトロアニリン〔一般名：ペンディメタリン〕等のジニトロアニリン系有効成分；メチル α -(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イルカルバモイルスルファモイル)-o-

トルアート〔一般名：ペンスルフロンメチル〕、エチル 5- (4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イルカルバモイルスルファモイル)-1-メチルピラゾール-4-カルボキシレート〔一般名：ピラゾスルフロンエチル〕、1- (2-クロロイミダゾ〔1, 2-a〕ピリジン-3-イルスルホニル)-3- (4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) 尿素〔一般名：イマゾスルフロン〕、1- (4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル)-3- [1-メチル-4- (2-メチル2H-テトラゾール-5-イル) ピラゾール-5-イルスルホニル] 尿素〔一般名：アジスルフロン〕等のスルホニルウレア系有効成分；N, N-ジエチル-3-メシチルスルホニル-1H-1, 2, 4-トリアゾール-1-カルボキサミド〔一般名：カフェンストロール〕、メチル 2- [(4, 6-ジメトキシピリミジン-2-イル) オキシ]-6- [1- (メトキシイミノ) エチル] ベンゾエート〔一般名：ピリミノバックメチル〕、5-tert-ブチル-3- (2, 4-ジクロロ-5- (プロプ-2-イニルオキシ) フェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2 (3H)-オン〔一般名：オキサジアルギル〕、3- (4-クロロ-5-シクロペンチルオキシ-2-フルオロフェニル)-5- (1-メチルエチリジン) オキサゾリジン-2, 4-ジオン〔一般名：ペントキサゾン〕、n-ブチル 2- [4- (2-フルオロ-4-シアノフェノキシ) フェノキシ] プロピオナート〔一般名：シハロホップブチル〕、4- (2-クロロフェニル)-N-シクロヘキシル-4, 5-ジヒドロ-N-エチル-5-オキソ-1H-テトラゾール-1-カルボキサミド、[3- (2-クロロ-4-メチルスルホニルベンゾイル)-4-フェニルチオ] ビシクロ- [3.2.1] オクト-3-エン-2-オン〔一般名：ベンゾビシクロン〕等の複素環系有効成分などがあげられる。

植物成長調整剤有効成分としては、例えば (2RS, 3RS)-1- (4-クロロフェニル)-4, 4-ジメチル-2- (1H-1, 2, 4-トリアゾール-1-イル) ペンタン-3-オール〔一般名：パクロブトラゾール〕等の複素環系有効成分などがあげられる。

殺菌剤有効成分としては、例えばO, O-ジイソプロピル-S-ベンジルチオホスフェート〔一般名：IBP〕等の有機リン系有効成分； α , α , α -トリフ

ルオロー3'-イソプロポキシ-オートルアニリド〔一般名：フルトラニル〕等のアミド系有効成分；3-アリルオキシ-1,2-ベンゾイソチアゾール-1,1-ジオキシド〔一般名：プロベナゾール〕、1,2,5,6-テトラヒドロピロロ〔3,2,1-ij〕キノリン-4-オン〔一般名：ピロキロン〕等の複素環系有効成分などがあげられる。

殺虫剤有効成分としては、例えばO,O-ジエチル-O-(2-イソプロピル-6-メチルピリミジン-4-イル)ホスホロチオエート〔一般名：ダイアジノン〕等の有機リン系有効成分；1-ナフチル-N-メチルカーバメート〔一般名：NAC〕等のカーバメート系有効成分；(RS)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル-(RS)-2,2-ジクロロ-1-(4-エトキシフェニル)シクロプロパンカルボキシレート〔一般名：シクロプロトリン〕、2-(4-エトキシフェニル)-2-メチルプロピル 3-フェノキシベンジル エーテル〔一般名：エトフェンプロックス〕等のピレスロイド系有効成分；1-(6-クロロ-3-ピリジルメチル)-N-ニトロイミダゾリジン-2-イリデンアミン〔一般名：イミダクロプリド〕、N,N-ジメチル-1,2,3-トリチアン-5-イルアミン〔一般名：チオシクラム〕等の複素環系有効成分；S,S'-2-ジメチルアミノトリメチレンジ(ベンゼンチオスルホナート)〔一般名：ベンスルタップ〕等の芳香環系有効成分などがあげられる。農薬活性成分は一種又は二種以上混合して使用してもよく、混合する場合の比率も適宜選択できる。農薬組成物中の農薬活性成分の配合割合は、それらの種類、使用目的毎に適宜選択できるが、通常0.01~80重量%の範囲である。一般に、前記農薬活性成分が固体の場合、水への溶解性及び分散性を高めるために予め粉碎することにより、粒径を1~200 μ m、望ましくは1~100 μ mの微細粒子として使用する。また、農薬活性成分が室温で液状である場合、農薬活性成分は嵩比重が1未満の閉鎖型中空体の表面、後記する担体、結合剤、物理性改良剤などに吸着あるいは担持させることにより、本発明の農薬組成物中から漏れ出さないようにされる。また、農薬活性成分が室温で固形状且つ有機溶媒に高度に可溶性である場合、農薬活性成分を安定化させるため、有機溶媒に溶解して室温で液状の農薬活性成分と同様に取り扱うことができる。

室温で固形状且つ有機溶媒に高度に可溶性な農薬活性成分を溶解する有機溶媒としては、種々のものを用いることができる。具体的に使用できる溶媒としては、例えばキシレン、エチルベンゼン、トリメチルベンゼン、プロピルベンゼン、イソプロピルベンゼン、ジエチルベンゼン、sec-ブチルベンゼン、tert-ブチルベンゼン、ペンチルベンゼン、トリエチルベンゼン、tert-ブチルトルエン、ポリエチルベンゼン、ジアミルベンゼン、ジイソプロピルベンゼン、シメン、アミルナフタレン、テトラリン、デカリン、芳香族石油ナフサ、軽ソルベントナフサ、重ソルベントナフサ等の炭化水素類；クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類；メチルアルコール、エチルアルコール、プロピルアルコール、イソプロピルアルコール、ペンタノール、ヘキサノール、オクタノール、ミリスチルアルコール、セチルアルコール、ステアシルアルコール、オレイルアルコール、デカノール、ドデシルアルコール等のアルコール類；アニソール、フェネトール、ブチルフェニルエーテル、メチルアニソール、ジヘキシルエーテル等のエーテル類；酢酸、オレイン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、アジピン酸、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸イソデシル、マレイン酸、セバシン酸、フタル酸、トリメリット酸等のカルボン酸類の各種エステル類、具体的にはベンジルエステル、メチルエステル、エチルエステル、プロピルエステル、イソプロピルエステル、ブチルエステル、2-エチルヘキシルエステル、オレイルエステル、デシルエステル、イソブチルエステル、イソデシルエステル、オクチルエステル、ノニルエステル、イソノニルエステル、ドデシルエステル、トリデシルエステル等のエステルなどを挙げることができる。有機溶媒は一種又は二種以上を混合して使用してもよく、混合する場合の比率も適宜選択できる。農薬組成物中の有機溶媒の配合割合は適宜選択できるが、通常0.5~40重量%の範囲である。

本発明の農薬組成物において使用する界面活性剤としては、例えば脂肪酸塩、アルキルスルホコハク酸塩、ジアルキルスルホコハク酸塩、ポリカルボン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、アルキル硫酸塩、アルキルアリール硫酸塩、アルキルジグリコールエーテル硫酸塩、アルコール硫酸エステル塩、アルキルスルホン酸塩、アルキルアリールスルホン酸塩、アリールスルホン酸塩、リグニンスルホン酸塩、アルキルジフェニルエーテルジスルホン酸塩、ポリスチレンスルホン酸塩

、アルキルリン酸エステル塩、アルキルアリールリン酸塩、スチリルアリールリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル硫酸塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールリン酸エステル塩、ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物の塩、ポリアクリル酸塩、アクリル酸ナトリウムホモポリマー、イソブチレン無水マレイシ酸コポリマーなどの陰イオン系界面活性剤が挙げられる。また、ソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、脂肪酸ポリグリセライド、脂肪酸アルコールポリグリコールエーテル、アセチレングリコール、アセチレンアルコール、オキシアルキレンブロックポリマー、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシエチレンスチリルアリールエーテル、ポリオキシエチレングリコールアルキルエーテル、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油、ポリオキシプロピレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレングリコール、ポリアルキレングリコールなどの非イオン系界面活性剤が挙げられる。界面活性剤は一種又は二種以上を混合して使用してもよく、混合する場合の比率も適宜選択できる。農薬組成物中の界面活性剤の配合割合は適宜選択できるが、通常0.1~40重量%の範囲である。これらの界面活性剤は、通常、農薬活性成分の田水中での拡散を補助する機能を有するものが用いられるが、中には結合剤(農薬組成物の強度を向上させるもの)あるいは崩壊剤としての機能を果たすものもある。

本発明の農薬組成物において使用する嵩比重が1未満の閉鎖型中空体としてはセラミック製のものが挙げられ、中でも平均粒子径が $400\mu\text{m}$ 以下であるものが望ましく、例えば、商品名イースフィアーズSL-150、イースフィアーズSL-350(共にエンバイロスフィアーズ社製)等のセラミックフィラーなどが挙げられる。閉鎖型中空体は一種又は二種以上を混合して使用してもよく、混合する場合の比率も適宜選択できる。農薬組成物中の閉鎖型中空体の配合割合は適宜選択できるが、通常0.5~90重量%の範囲であり、粒状農薬組成物を得る場合には、

少なくとも10重量%、好ましくは25～90重量%の範囲、錠剤農薬組成物を得る場合には0.5～8.0重量%の範囲で使用するのが望ましい。

本発明の農薬組成物で用いる結合剤としては、グアーガム、ローカストビーンガム、トラガカントガム、ザンサンガム、アラビアガム等の各種ガム類；アルギン酸ナトリウム、アルギン酸アンモニウム、アルギン酸プロピレングリコールエステル等のアルギン酸誘導体；ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ポリビニルメタクリレート、ポリエチレンオキシド、ポリアクリル酸、ポリアクリル酸ナトリウム、ポリアクリル酸アミド等の有機高分子化合物；卵白、アルブミン、カゼイン、ゼラチン等の動物性又は植物性の水溶性蛋白質；メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、カルボキシメチルセルロースナトリウム、カルボキシエチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース等のセルロース誘導体；デキストリン、デンプン、カルボキシメチルスターチナトリウム、ヒドロキシエチルスターチ、ヒドロキシプロピルスターチ等のデンプン類；リグニンスルホン酸ナトリウム、リグニンスルホン酸カルシウム等のリグニンスルホン酸誘導体などをあげることができる。これらの中には崩壊剤としての機能を果たすものもある。結合剤は一種又は二種以上混合して使用してもよく、混合する場合の比率も適宜選択できる。農薬組成物中の結合剤の配合割合は適宜選択できるが、通常0.1～5.0重量%の範囲である。

本発明の農薬組成物で用いる崩壊剤としては、医薬、農薬、食品の分野で通常用いられる崩壊剤が使用でき、例えば、炭酸塩と固体酸の組合せ、寒天、澱粉、ヒドロキシプロピルスターチ、アルギン酸ソーダ、カルボキシメチル澱粉エーテル、アラビアゴム、トラガント、ゼラチン、カゼイン、結晶セルロース、カルボキシメチルセルロースカルシウム、ツィーン、プルロニック、ラウリン酸ソーダ、カルボキシリックレジン、硫安、塩化カリウム、食塩、尿素、アニオン界面活性剤、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、塩化アルミニウム、ぶどう糖、乳糖、グルタミン酸ソーダ、イノシン酸ソーダ、デキストリン等を挙げることができる。また、水によって膨張・崩壊するベントナイトのような鉱物質も挙げられる。これらのものは一種又は二種以上混合して使用してもよく、混合する場合の比

率も適宜選択できる。本発明の農業組成物中の崩壊剤の配合割合は適宜選択できるが、通常0.5～80重量%の範囲である。

なお、上述の崩壊剤の中には、農業組成物を製造する際には結合剤としての役割を果たすものや、農業組成物を水田に投下した際には農業活性成分を拡散させる界面活性剤も含まれるので、これらの役割をも持たせる場合には、その配合割合を適宜調整すればよい。

崩壊剤として炭酸塩と固体酸を用いる場合の炭酸塩としては、アルカリ金属、アルカリ土類金属、アンモニア等の炭酸塩又は炭酸水素塩が挙げられ、それらの具体例としては、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸カルシウム、炭酸リチウム、炭酸アンモニウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸水素アンモニウム、セスキ炭酸ナトリウム、セスキ炭酸カリウム、セスキ炭酸アンモニウム等を挙げることができる。固体酸としては、例えばクエン酸、コハク酸、マレイン酸、乳酸、フマル酸、酒石酸、シュウ酸、マロン酸、リンゴ酸、アジピン酸、p-トルエンスルホン酸、スルファミン酸、ホウ酸、リン酸二水素ナトリウム、リン酸二水素カリウム等を挙げることができる。炭酸塩及び固体酸の各々は、一種又は二種以上混合して使用してもよく、混合する場合の比率も適宜選択できる。

本発明の農業組成物においては、所望により担体、物理性改良剤、安定化剤などの補助剤を添加してもよい。

担体としては、通常の農業組成物に使用されるものであれば、特に限定されることはないが、例えばパーライト、タルク、ベントナイト、炭酸カルシウム、酸性白土、珪石、ジークライト、ケイソウ土、カオリン、セリサイト、ホワイカーボンなどの無機担体；デンプン、グルコース、ラクトース、シュクロース、大鋸屑、藁、パルプ、モミガラなどの有機担体等が挙げられる。担体は一種又は二種以上を混合して使用してもよく、混合する場合の比率も適宜選択できる。農業組成物中の担体の配合割合は適宜選択できるが、通常0.1～50重量%の範囲である。

物理性改良剤としては、農業組成物の流動性を改良して水面拡張性を増強し得る物質であればよく、例えばホワイカーボン類、パラフィン粉末類、ポリエチ

レンワックス等の高分子粉末類等の水不溶性または難溶性粉末などが挙げられる。物理性改良剤は一種又は二種以上を混合して使用してもよく、混合する場合の比率も適宜選択できる。農薬組成物中の物理性改良剤の配合割合は適宜選択できるが、通常0.5~40重量%の範囲である。

安定化剤は、農薬組成物の保存安定性を向上させるものである。例えば加水分解を起こし易い農薬活性成分(スルホニルウレア系有効成分等)を含有させた場合においては、該農薬活性成分と、空気中の水分や農薬組成物中に混入している水分との接触を抑えることにより、農薬活性成分の経時変化(分解)を抑制する乾燥剤がそれに該当する。また、本発明の農薬組成物において、崩壊剤として炭酸塩及び固体酸を用いた際、農薬組成物の保存安定性が不十分となる場合があるが、その主たる原因は、炭酸塩と固体酸とが、空気中の水分や、農薬組成物中に混入している水分と反応して炭酸ガスを発生することにある。これにより、農薬組成物を湛水下水田に施用した際のその崩壊性が不十分となったり、農薬活性成分の溶解性や分散性が不十分となったり、或は農薬組成物をアルミラミネート袋で包装する場合においては、その袋が膨張したり、破損したりするといった問題点が発生する。更には、炭酸ガスの発生に付随して水が副生し、炭酸ガスの発生がより促進されるだけでなく、農薬活性成分の種類によっては、その経時安定性が損なわれるといった問題点が発生する場合もある。そのような農薬活性成分としては、スルホニルウレア系のものなどが挙げられる。本発明においては、このような問題点を解決する為に安定化剤を適宜配合してもよい。安定化剤としては、炭酸塩及び固体酸と水分との接触を抑える効果を主として保持する乾燥剤、或は発生してしまった炭酸ガスを吸収する効果を主として保持する炭酸ガス吸収剤などが挙げられる。乾燥剤としては、例えば無水硼酸 (B_2O_3)、珪酸 (HBO_2)、生石灰 (CaO)、酸化バリウム (BaO)、硼酸 (H_3BO_3)、酸化アルミニウム (Al_2O_3)、酸化マグネシウム (MgO)、アルミン酸ナトリウム ($NaAlO_2$)、酸化鉄 (FeO 、 $\alpha-Fe_2O_3$ 、 $\gamma-Fe_2O_3$ 、 Fe_3O_4)、シガール、無水塩化カルシウム、水素化カルシウム (CaH_2)、水素化アルミニウム ($LiAlH_4$)、無水硫酸ナトリウム、無水硫酸銅、無水硫酸カルシウム、ゼライト、無水ケイ酸カルシウム、酸化チタン、二酸化ケイ素、活性炭、アルミン酸ナトリウムなどが挙げられ、炭酸ガス吸収剤としては、例えば水酸化カルシウム(消石灰)、水酸化マグネシウムなどが挙げられるが

、中でも無水酢酸、酸化マグネシウムのような乾燥剤或は水酸化カルシウム、水酸化マグネシウムのような炭酸ガス吸収剤が望ましい。安定化剤は、農薬組成物中にそのまま配合しても、それ自身を別途袋に包装し、安定化剤を含んでいない農薬組成物とともにアルミラミネート袋等で包装しても、所期の目的を達成することができる。安定化剤は、一種又は二種以上を混合して使用してもよく、混合する場合の比率も適宜選択できる。農薬組成物中の安定化剤の配合割合は適宜選択できるが、通常0.1～4.0重量%の範囲である。

本発明の農薬組成物は、前記各農薬活性成分の水に対する溶解性、浮遊分散性を損なわない限り、その他の農薬活性成分を適宜配合してもよい。また、溶剤、分解防止剤、葉害軽減剤、分散安定剤などの通常使用される農業用助剤も用いることができる。

本発明の農薬組成物の施用量は、水田10アール当たり10～3000g、好ましくは100～1000gである。粒状農薬組成物の場合、そのまま水田に10アール当たり10～3000g、好ましくは100～1000gの範囲で処理する方法や水溶性フィルムで10～100gずつ包装してパック剤とし、該パック剤を10アール当たり10～3000g、好ましくは100～1000gの範囲で水田畦畔から投げ込み施用する方法または水口若しくは給水筒に施用する方法等の簡便な方法で 사용할ことができる。錠剤農薬組成物の場合、通常1個あたり1.0～110gとなるよう製造し、水田10アールあたりの施用量が50～3000g、好ましくは100～1000gとなるよう使用する。水田10アールあたりの施用個数は、通常1～300個、好ましくは1～150個である。また粒状農薬組成物以外であっても、前記粒状農薬組成物の場合と同様に、適宜水溶性フィルム等で包装し、施用することが可能である。

前記のように本発明の農薬組成物を包装してパック剤として使用するときの水溶性フィルムとしては、本発明の農薬組成物を水田中に投入したときに、速やかに、例えば数秒～24時間程度で溶解するものであれば、何れのものでも使用できる。例えば、ポリビニルアルコール、変性ポリビニルアルコール、水溶性ビニロン、水溶性デキストリン、ポリエチレングリコール、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、メチルセルロース、アルギン酸塩、ゼラチン

、ペクチン、プルラン、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸塩、ポリエチレンオキサイド、澱粉などを素材とした高分子フィルム；紙や繊維などに前記水溶性フィルムを塗布又は含浸処理したものなどが挙げられ、これら水溶性フィルムの膜厚は、10～50 μm 、望ましくは20～40 μm が適当である。

実施例

以下に実施例、試験例を挙げ、本発明を具体的に説明するが、この実施例、試験例は単に本発明の説明のため、その具体的な態様の参考のために提供されているものである。これらの例示は本発明の特定の具体的な態様を説明するためのものであるが、本願で開示する発明の範囲を限定したり、あるいは制限することを表すものではない。本発明では、本明細書の思想に基づく様々な実施形態が可能であることは理解されるべきである。

実施例1

(1) 農業活性成分としてベンスルフロンメチル（一般名）1.16重量部；界面活性剤としてニューカルゲン-SX-C（竹本油脂株式会社製、ドデシルベンゼンスルホン酸Na塩）2重量部、ソカランPA30CL（BASF社製、ポリアクリル酸Na塩）3重量部；担体としてパーライト#36（東興パーライト工業株式会社製）20重量部；高比重が1未満の閉鎖型中空体としてイースフィアーズSL150（エンバイロスフィアーズ社製、粒度範囲20～150ミクロン、平均粒径100ミクロン）29.69重量部を用い、それらを均一の粉末状混合物とした。

(2) 農業活性成分としてのシハロホップブチル（一般名）4.12重量部に、有機溶媒としてのビニサイザー50（花王株式会社製、アジピン酸ジイソデシル）24.72重量部を加え、60℃で加熱溶解し液状とした後、農業活性成分としてのプレチラクロール（一般名）10.31重量部を加え均一な混合溶液とした。

(3) (1)の粉末状混合物に、(2)の混合溶液および界面活性剤としてのオルフィンSTG（日信化学工業株式会社製、アセチレングリコール系）3重量部を加え十分に混合した後、結合剤としてのゼラチン（ナカライテスク株式会社製）20%水溶液10重量部を加えて混練し、1.2mmスクリーンを装着したドームグラ

造粒機（不二パウダル株式会社製、DG-L1型）で押し出し造粒した。この造粒物を60℃の温風下で2時間乾燥、整粒（12〜24メッシュ）し、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 2

パーライト#36の使用量を10重量部に、イースフィアーズSL150の使用量を47.93重量部に、ビニサイザー50の使用量を16.48重量部にそれぞれ変更すること以外は実施例1と同様にして、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 3

パーライト#36の使用量を10重量部に、イースフィアーズSL150の使用量を50.93重量部に、ビニサイザー50の使用量を16.48重量部にそれぞれ変更し、オルフィンSTGを使用しないこと以外は実施例1と同様にして、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 4

イースフィアーズSL150の使用量を32.69重量部に変更し、オルフィンSTGを使用しないこと以外は実施例1と同様にして、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 5

（1）農薬活性成分としてベンスルフロンメチル（一般名）1.16重量部；界面活性剤としてニューカルゲン-SX-C（竹本油脂株式会社製、ドデシルベンゼンスルホン酸Na塩）2重量部；担体としてパーライト#36（東興パーライト工業株式会社製）10重量部；結合剤としてアミコール6H（日澱化学株式会社製、酵素変性デキストリン）3重量部；嵩比重が1未満の閉鎖型中空体としてイースフィアーズSL150（エンバイロスフィアーズ社製、粒度範囲20〜150ミクロン、平均粒径100ミクロン）47.93重量部を用い、それらを均一の粉末状混合物とした。

（2）農薬活性成分としてのシハロホップブチル（一般名）4.12重量部に、有機溶媒としてのビニサイザー50（花王株式会社製、アジピン酸ジイソデシル）16.4

8重量部を加え、60°Cで加熱溶解し液状とした後、農業活性成分としてのプレチラクロール（一般名）10.31重量部を加え均一な混合溶液とした。

（3）（1）の粉末状混合物に、（2）の混合溶液および界面活性剤としてのオルフィンSTG（日信化学工業株式会社製、アセチレングリコール系）3重量部を加え十分に混合した後、結合剤としてのゼラチン（ナカライテスク株式会社製）20%水溶液10重量部を加えて混練し、1.2mmスクリーンを装着したドームグラニ造粒機（不二パウダル（株）社製、DG-L1型）で押し出し造粒した。この造粒物を60°Cの温風下で2時間乾燥、整粒（12〜24メッシュ）し、農業組成物（粒剤）を得た。

実施例6

イースフィアーズSL150の使用量を50.93重量部に変更し、オルフィンSTGを使用しないこと以外は実施例5と同様にして、農業組成物（粒剤）を得た。

実施例7

（1）農業活性成分としてベンスルフロンメチル（一般名）1.16重量部；界面活性剤としてニューカルゲン-SX-C（竹本油脂株式会社製、ドデシルベンゼンスルホン酸Na塩）3重量部；結合剤としてアミコール6H（日澁化学株式会社製、酵素変性デキストリン）3重量部；担体としてグラフローM（日澁化学株式会社製、トウモロコシ澱粉造粒物）26.5重量部；嵩比重が1未満の閉鎖型中空体としてイースフィアーズSL150（エンバイロスフィアーズ社製、粒度範囲20〜150ミクロン、平均粒径100ミクロン）39.67重量部を用い、それらを均一の粉末状混合物とした。

（2）農業活性成分としてのシハロホップチル（一般名）4.12重量部を有機溶媒としてのビニサイザー50（花王株式会社製、アジピン酸ジイソデシル）8.24重量部に加え60°Cで加熱溶解し液状とした後、農業活性成分としてのプレチラクロール（一般名）10.31重量部を加え均一な混合溶液とした。

（3）（1）の粉末状混合物に、（2）の混合溶液、および界面活性剤としてのオルフィンSTG（日信化学工業株式会社製、アセチレングリコール系）2重量部

を加え十分に混合した後、結合剤としてのゼラチン（ナカライテスク株式会社製）20%水溶液10重量部を加えて混練し、1.2mmスクリーンを装着したドームグライン造粒機（不二パウダル株式会社製、DG-L1型）で押し出し造粒した。この造粒物を60℃の温風下で2時間乾燥、整粒（12～24メッシュ）し、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 8

グラフローMの使用量を23.5重量部に、イースフィアーズSL150の使用量を34.43重量部に、ビニサイザー50の使用量を16.48重量部に、それぞれ変更すること以外は実施例7と同様にして、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 9

イースフィアーズSL150の使用量を42.67重量部に変更し、アミコール6Hを使用しないこと以外は実施例7と同様にして、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 10

グラフローMの使用量を20重量部に、イースフィアーズSL150の使用量を46.17重量部にそれぞれ変更すること以外は実施例7と同様にして、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 11

グラフローMの使用量を26.8重量部に、イースフィアーズSL150の使用量を40.37重量部にそれぞれ変更し、オルフィンSTG及びニューカルゲンSX-Cを使用せず、界面活性剤としてニューカルゲン-EX-70（竹本油脂株式会社製、ジオクチルスルホサキシネートNa塩70%）1重量部及びイソバン600（クラレ株式会社製、イソブチレン無水マレイン酸コポリマー）3重量部を使用すること以外は、実施例7と同様にして、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 1 2

グラフローMの使用量を26.8重量部に、イースフィアーズSL150の使用量を40.37重量部にそれぞれ変更し、オルフィンSTGを使用せず、界面活性剤としてニューカルゲン-EX-70を1重量部使用すること以外は、実施例7と同様にして、農業組成物(粒剤)を得た。

実施例 1 3

(1) 農業活性成分としてベンスルフロンメチル(一般名)1.08重量部;界面活性剤としてニューカルゲン-EX-70(竹本油脂株式会社製、ジオクチルスルホサクシネートNa塩70%)2重量部;結合剤としてアミコール6H(日澱化学株式会社製、酵素変性デキストリン)3重量部、カゼイン(ナカライテスク株式会社製)5重量部および水酸化マグネシウム(ナカライテスク株式会社製)5重量部;担体としてパーライト#36(東興パーライト工業株式会社製)10重量部;嵩比重が1未満の閉鎖型中空体としてイースフィアーズSL150(エンバイロスフィアーズ社製、粒度範囲20~150ミクロン、平均粒径100ミクロン)42.38重量部を用い、それらを均一の粉末状混合物とした。

(2) 農業活性成分としてのシハロホップブチル(一般名)3.94重量部を、有機溶媒としてのビニサイザー50(花王株式会社製、アジピン酸ジイソデシル)15.76重量部に加え、60℃で加熱溶解し液状とした後、農業活性成分としてのプレチラクロール(一般名)9.84重量部を加え均一な混合溶液とした。

(3) (1)の粉末状混合物に、(2)の混合溶液を加え十分に混合した後、結合剤としてのゼラチン(ナカライテスク株式会社製)20%水溶液10重量部を加えて混練し、1.2mmスクリーンを装着したドームグラン造粒機(不二パウダル株式会社製、DG-L1型)で押し出し造粒した。この造粒物を60℃の温風下で2時間乾燥、整粒(12~24メッシュ)し、農業組成物(粒剤)を得た。

実施例 1 4

カゼイン5重量部を、りん酸2水素ナトリウム(ナカライテスク株式会社製)5重量部に変更すること以外は、実施例13と同様にして、農業組成物(粒剤)を得た。

実施例 15

(1) 農薬活性成分としてベンスルフロンメチル（一般名）1.08重量部；界面活性剤としてニューカルゲン-BX-70（竹本油脂株式会社製、ジオクチルスルホサクシネートNa塩70%）2重量部；結合剤としてアルギン酸ナトリウム（ナカライテスク株式会社製）5重量部；担体としてパーライト#36（東興パーライト工業株式会社製）10重量部；嵩比重が1未満の閉鎖型中空体としてイースフィアーズSL150（エンバイロスフィアーズ社製、粒度範囲20～150ミクロン、平均粒径100ミクロン）52.38重量部を用い、均一な粉末状混合物とした。

(2) 農薬活性成分としてのシバロホップブチル（一般名）3.94重量部を有機溶媒としてのビニサイザー50（花王株式会社製、アジピン酸ジイソデシル）15.76重量部に加え60℃で加熱溶解し液状とした後、農薬活性成分としてのプレチラクロール（一般名）9.84重量部を加え均一な混合溶液とした。

(3) (1)の粉末状混合物に、(2)の混合溶液を加え十分に混合した後、水を加えて混練し、1.2mmスクリーンを装着したドームグラン造粒機（不二パウダー株式会社製、DG-E1型）で押し出し造粒した。この造粒物を60℃の温風下で2時間乾燥、整粒（12～24メッシュ）し、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 16

アルギン酸ナトリウム5重量部をサンエクスC（日本製紙株式会社製、リグニンスルホン酸Ca塩）2重量部に、イースフィアーズSL150の使用量を55.38重量部にそれぞれ変更すること以外は、実施例15と同様にして、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 17

アルギン酸ナトリウム5重量部をカゼイン（ナカライテスク株式会社製）5重量部および水酸化マグネシウム（ナカライテスク株式会社製）5重量部に、イースフィアーズSL150の使用量を47.38重量部にそれぞれ変更すること以外は、実施例15と同様にして、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 18

アルギン酸ナトリウム 5 重量部をりん酸 2 水素ナトリウム (ナカライテスク株式会社製) 5 重量部および水酸化マグネシウム (ナカライテスク株式会社製) 5 重量部に、イースフィアーズ SL150 の使用量を 47.38 重量部にそれぞれ変更すること以外は、実施例 15 と同様にして、農薬組成物 (粒剤) を得た。

実施例 19

アルギン酸ナトリウム 5 重量部をアラビアガム (岩城製薬株式会社製) 2 重量部に、イースフィアーズ SL150 の使用量を 55.38 重量部にそれぞれ変更すること以外は、実施例 15 と同様にして、農薬組成物 (粒剤) を得た。

実施例 20

(1) 農薬活性成分としてベンスルフロンメチル (一般名) 1.16 重量部; 界面活性剤としてニューカルゲン-EX-70 (竹本油脂株式会社製、ジオクチルスルホサクシネート Na 塩 70%) 2 重量部及びイソバン 600 (クラレ株式会社製、イソブチレン-無水マレイン酸コポリマー) 1.15 重量部、結合剤としてアミコール 6H (日澁化学株式会社製、酵素変性デキストリン) 3 重量部、担体としてパーライト #36 (東興パーライト工業株式会社製) 10 重量部、嵩比重が 1 未満の閉鎖型中空体としてイースフィアーズ SL150 (エンバイロスフィアーズ社製、粒度範囲 20 ~ 150 ミクロン、平均粒径 100 ミクロン) 47.35 重量部を用い、それらを均一の粉末状混合物とした。

(2) 農薬活性成分としてのシハロホップブチル (一般名) 4.12 重量部に、有機溶媒としてのビニサイザー 50 (花王株式会社製、アジピン酸ジイソデシル) 16.48 重量部を加え、60℃で加熱溶解し液状とした後、農薬活性成分としてのプレチラクロール (一般名) 10.18 重量部を加え均一な混合溶液とした。

(3) (1) の粉末状混合物に、(2) の混合溶液を加え十分に混合した後、界面活性剤としてのアクリゾール G-200 (花王株式会社製、アクリル酸ナトリウムホモポリマー) 2 重量部、結合剤としてのゼラチン (ナカライテスク株式会社製) 20% 水溶液 10 重量部を加えて混練し、1.2mm スクリーンを装着したドームゲ

ラン造粒機（不二パウダル株式会社製、DG-L1型）で押し出し造粒した。この造粒物を60℃の温風下で2時間乾燥、整粒（12～24メッシュ）し、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 2.1

（1）農薬活性成分としてベンスルフロンメチル（一般名）1.08重量部、界面活性剤としてニューカルゲン-EX-70（竹本油脂株式会社製、ジオクチルスルホサクシネートNa塩70%）2重量部、結合剤としてアミコール6H（日澱化学株式会社製、酵素変性デキストリン）10重量部、担体としてパーライト#36（東興パーライト工業株式会社製）14.94重量部、嵩比重が1未満の開鎖型中空体としてイースフィアーズSL150（エンバイロスフィアーズ社製、粒度範囲20～150ミクロン、平均粒径100ミクロン）49.82重量部を用い、それらを均一の粉末状混合物とした。

（2）農薬活性成分としてのシハロホップブチル（一般名）3.94重量部を有機溶媒としてのビニサイザー50（花王株式会社製、アジピン酸ジイソデシル）7.88重量部に加え、60℃で加熱溶解し液状とした後、農薬活性成分としてのブレチラクロール（一般名）9.84重量部を加え均一な混合溶液とした。

（3）（1）の粉末状混合物に、（2）の混合溶液を加え十分に混合した後、結合剤としてのセロゲン703A（第一工業製薬株式会社製、カルボキシメチルセルロースナトリウム）5%水溶液10重量部を加えて混練し、1.2mmスクリーンを装着したドームグラン造粒機（不二パウダル株式会社製、DG-L1型）で押し出し造粒した。この造粒物を60℃の温風下で2時間乾燥、整粒（12～24メッシュ）し、農薬組成物（粒剤）を得た。

実施例 2.2

ベンスルフロンメチル0.67重量部、炭酸水素ナトリウム19.48重量部、無水クエン酸6.5重量部、デキストリン（商品名：アミコール6H、日澱化学（株）製）10重量部、リグニルスルホン酸金属塩（商品名：ニューカルゲン WG-4、竹本油脂（株）製）2部及び ジアルキルスルホサクシネートナトリウム（商品名：ニューカルゲン EX-70、竹本油脂（株）製）2重量部を混合した後、遠心粉碎機

(日本精機(株)製: 1mmφスクリーン)にて粉碎し混合粉碎品を得た。次に、閉鎖型中空体(商品名: イース77-ス SL-150、エンバロス77-ス社製)44.8重量部を加え混合し、混合粉を乳鉢に移し、ブタクロール14.35重量部を加え均一になるまで混合した。更に、加科シチルセロ-ストリウム(商品名: セゲン 7A、第一工業製薬(株)製)10%水溶液2重量部を加え均一になるまで混合した。得られた混合物の15gを直径40mm、深さ50mmの臼に入れ、打錠成型機(島津製作所(株)製ハドルス; SSP-10A形)で加圧(50kg/cm²)して錠剤を得た。次いで、臼より錠剤を取り出し、60℃の恒温乾燥機中で2時間乾燥し、直径40mm、厚み12mm、密度0.95g/cm³の農薬組成物(錠剤)14.55gを得た。

実施例 2 3

ベンスルフロンメチル0.67重量部を0.33重量部に、炭酸水素ナトリウム19.48重量部を21.05重量部に、無水クエン酸6.5重量部を5.27重量部に各々変更する以外は前記実施例 2 2 と同様にして、直径40mm、厚み13mm、密度0.89g/cm³の農薬組成物(錠剤)14.50gを得た。

実施例 2 4

炭酸水素ナトリウム21.05重量部を13.16重量部に、無水クエン酸5.27重量部を13.16重量部に各々変更する以外は前記実施例 2 3 と同様にして、直径40mm、厚み12mm、密度0.97g/cm³の農薬組成物(錠剤)14.60gを得た。

実施例 2 5

ベンスルフロンメチル0.33重量部を用いずに、ブタクロール14.35重量部を9.57重量部に、炭酸水素ナトリウム13.16重量部を19.82重量部に、無水クエン酸13.16重量部を6.61重量部に、閉鎖型中空体(商品名: イース77-ス SL-150、エンバロス77-ス社製)44.8重量部を49.8重量部に各々変更する以外は前記実施例 2 4 と同様にして、直径40mm、厚み14mm、密度0.83g/cm³の農薬組成物(錠剤)14.60gを得た。

実施例 2 6

炭酸水素ナトリウム19.48重量部を23.23重量部に、無水クエン酸6.5重量部を7.75重量部に、デキストリン(商品名：アミコル 6L、日澱化学(株)製)10重量部を5重量部に各々変更する以外は前記実施例 2 2 と同様にして、直径40mm、厚み14mm、密度0.83 g/cm³の農業組成物(錠剤) 14.55gを得た。

実施例 2 7

炭酸水素ナトリウム23.23重量部を11.98重量部に、無水クエン酸7.75重量部を4重量部に、デキストリン(商品名：アミコル 6L、日澱化学(株)製)5重量部を20重量部に各々変更する以外は前記実施例 2 6 と同様にして、直径40mm、厚み12mm、密度0.97 g/cm³の農業組成物(錠剤) 14.55gを得た。

実施例 2 8

ベンスルフロンメチル0.67重量部、炭酸水素ナトリウム19.48重量部、無水クエン酸6.5重量部、デキストリン(商品名：アミコル 6L、日澱化学(株)製)10重量部、リゲニルホウ酸金属塩(商品名：ニューカザン WG-4、竹本油脂(株)製)2重量部及びアルキルホウ酸ナトリウム(商品名：ニューカザン EX-70、竹本油脂(株)製)2重量部を混合した後、遠心粉碎機(日本精機(株)製：1mmφスクリーン)にて粉碎し混合粉碎品を得た。次に、閉鎖型中空体(商品名：イースアイズ SL-150、エンパイロアイズ社製)44.8重量部を加え混合し、混合品を乳鉢に移し、ブタクロール14.35重量部を加え均一になるまで混合した。更に、カルキナリルホウ酸ナトリウム(商品名：セゲン 7A、第一工業製薬(株)製)10%水溶液2重量部を加え均一になるまで混合した。得られた混合物の930gを打錠成型機((株)畑鉄工所製HT-B18BH₃-S(直径40mm))で連続打錠成型(加圧は40kg/cm²)し、得られた湿製品を60℃の恒温乾燥機中で2時間乾燥し、直径40mm、厚み18mm、密度0.90 g/cm³、19.8g/個の農業組成物(錠剤) 46個を得た。

実施例 2 9

ベンスルフロンメチル0.67重量部、炭酸水素ナトリウム19.48重量部、無水クエン酸6.5重量部、閉鎖型中空体(商品名：イースアイズ SL-150、エンパイロアイズ社製)44.8重

量部、チキストリン(商品名:アミコール 6L、日澁化学(株)製)10重量部、リゲニルスルホン酸金属塩(商品名:ニューカダゲン WG-4、竹本油脂(株)製)2重量部及びリゲニルスルホン酸ナトリウム(商品名:ニューカダゲン EX-70、竹本油脂(株)製)2重量部をミキサーで良く混合した。次に、ブタクロール14.35重量部を加えミキサーにて均一になるまで混合した。更に、カルキシチルセルロースナトリウム(商品名:セロゲン 7A、第一工業製薬(株)製)10%水溶液2重量部を加え均一になるまで混合した。得られた混合物の18kgをブリクティングマシン(大塚鉄工(株)製K-102型:粉砕サイズ7cc、成型圧50kg/cm²、炭団状)で製型し、得られた湿製品を60°Cの恒温乾燥機中で2時間乾燥し、密度0.9g/cm³、6.5g/個の農業組成物(錠剤)2769個を得た。

実施例 3 0

ベンズルスフロノメチル0.33重量部、炭酸水素ナトリウム18.6重量部、無水クエン酸6.25重量部、チキストリン(商品名:アミコール 6L、日澁化学(株)製)10重量部、リゲニルスルホン酸金属塩(商品名:ニューカダゲン WG-4、竹本油脂(株)製)2部及び無水酢酸3重量部を混合した後、遠心粉碎機(日本精機(株)製:1mmφスクリーン)にて粉砕し混合粉碎品を得た。粉碎品に、閉鎖型中空体(商品名:イース717-XSL-150、エンバロス717-X社製)44.8重量部を加え混合し、更にブタクロール14.82重量部を加えて混合した。そこに、カルキシチルセルロースナトリウム(商品名:セロゲン 7A、第一工業製薬(株)製)10%水溶液2重量部を加え均一になるまで混合した。得られた混合物の15gを直径40mm、深さ50mmの臼に入れ、打錠成型機(島津製作所(株)製ハンドプレス; SSP-10A形)で加圧(50kg/cm²)して錠剤を得た。次いで、臼より錠剤を取り出し、60°Cの恒温乾燥機中で2時間乾燥し、直径40mm、厚み12.4mm、密度0.95g/cm³の農業組成物(錠剤)14.75gを得た。

実施例 3 1

無水酢酸3重量部を酸化マグネシウム(重質)5重量部に、閉鎖型中空体(商品名:イース717-XSL-150、エンバロス717-X社製)44.8重量部を42.8重量部に各々変更する以外は前記実施例 3 0と同様にして、直径40mm、厚み12.9mm、密度0.91g/cm³の農業組成物(錠剤)14.7gを得た。

実施例 3 2

無水杓酸3重量部を水酸化マグネシウム5重量部に、閉鎖型中空体（商品名：イース717、SSL-150、エポックス717-7社製）44.8重量部を42.8重量部に各々変更する以外は前記実施例 3 0 と同様にして、直径40mm、厚み13.3mm、密度0.88 g/cm³の農業組成物（錠剤）14.72gを得た。

実施例 3 3

無水杓酸3重量部を水酸化カルシウム3重量部に変更する以外は前記実施例 3 0 と同様にして、直径40mm、厚み13.0mm、密度0.90 g/cm³の農業組成物（錠剤）14.74gを得た。

実施例 3 4

前記実施例 3 0 により得られる混合物を、ブリケッティングマシン（大塚鉄工株式会社製、K-102型、ポケットサイズ7CC、成型圧50Kg/cm²、炭団状）で成型し、農業組成物（錠剤）を得る。

実施例 3 5

ベンスルフロロンメチル0.33重量部を用いずに、炭酸水素ナトリウム1.8、6重量部を17.33重量部に、無水クエン酸6.25重量部を5.8重量部に各々変更し、ジアルキルスルホサクシネートナトリウム（商品名：ニューカルゲンBX-70、竹本油脂株式会社製）2重量部を更に含む以外は前記実施例 3 0 と同様にして得られる混合物を、ブリケッティングマシン（大塚鉄工株式会社製、K-102型、ポケットサイズ7CC、成型圧50Kg/cm²、炭団状）で成型し、農業組成物（錠剤）を得る。

実施例 3 6

ピラゾキシフェン16重量部、炭酸水素ナトリウム60重量部、無水クエン酸20重量部及び粉末卵白（BGG WHITES Chicken Dried；シグマアルドリッチジャパン製）1重量部を混合し、そこへポリオキシエチレンポリオキシプロピレング

リコール（商品名：PEPOL B-181；東邦化学製）3重量部及び水分を0.4%含有するエタノール2mlを添加し、混合してアルミ製カップ型枠に流し込み、80℃で2分間加熱し、放冷、乾燥して農薬組成物（10g製剤品）を得た。

実施例37

クロメトキシフェン4重量部、炭酸水素ナトリウム6.9重量部、無水クエン酸2.3重量部及び粉末卵白（EGG WHITES-Chicken Dried；シグマアルドリッチジャパン製）1重量部を混合し、そこへポリオキシエチレンポリオキシプロピレングリコール（商品名：PEPOL B-181；東邦化学製）3重量部及び水分を0.4%含有するエタノール2mlを添加し、混合してアルミ製カップ型枠に流し込み、80℃で2分間加熱し、放冷、乾燥して農薬組成物（10g製剤品）を得た。

実施例38

炭酸水素ナトリウム6.4重量部、無水クエン酸2.2重量部及び粉末卵白（EGG WHITES Chicken Dried；シグマアルドリッチジャパン製）1重量部を混合し、そこへブタクロール10重量部、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレングリコール（商品名：アデカブルロニックL61；旭電化工業製）3重量部及び水分を0.5%含有するエタノール10mlを添加し、混合してプラスチック製丸形タッパー型枠に流し込み、80℃で2分間加熱し、放冷、乾燥して農薬組成物（50g製剤品）を得た。

実施例39

炭酸水素ナトリウム57.75重量部及びリンゴ酸19.25重量部を混合し、そこへブタクロール20重量部、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレングリコール（商品名：アデカブルロニックL61；旭電化工業製）3重量部及び水分を0.5%含有するエタノール10mlを添加し、混合してプラスチック製丸形タッパー型枠に流し込み、80℃で2分間加熱し、放冷、乾燥して農薬組成物（

50 g製剤品)を得た。

実施例40

炭酸水素ナトリウム64重量部、無水クエン酸22重量部及びデキストリン(商品名:アミコール 6H;日澱化学製)1重量部を混合し、そこへブタクロール10重量部及びポリオキシエチレンポリオキシプロピレングリコール(商品名:PEPOL B-181;東邦化学製)3重量部を添加した後、水分を98%含有するように別途調製しておいた高分子化合物(商品名:サンフレッシュ ST-100;三洋化成工業製)0.25gを添加し、混合してアルミ製カップ型枠に流し込み、80℃で2分間加熱し、放冷、乾燥して農薬組成物(25g製剤品)を得た。

試験例1

1/3000aバットに土を詰め、入水し、代掻きをした後、ノビエの種子を播種し、水深を4cmに保持した。ノビエが2.5~3葉期となった時期に前記実施例1および実施例7で得られた粒剤を500g/10aとなるように水面に投下した。

処理2週間後および4週間後にノビエの生育抑制程度を肉眼で観察し、0(無処理区と同等)~100(完全枯殺)で評価した。試験は2連制で実施し、その平均値をだした。結果を表1に示した。

表1

実施例	抑草率 (%)	
	2週間後	4週間後
1	8.5	9.3
7	8.8	9.3

試験例 2

縦0.15m×横4mの雨樋に土を詰め、入水し、代掻きをした後、ノビエ、ホタルイ、コナギ、ウリカワの各種子を播種し、水深を4cmに保持した。代掻き1日後にウリカワの塊根を移植した。ノビエが2.3～3葉期、ホタルイが2～2.3葉期、コナギが0.5～1.3葉期、ウリカワが1.7～2.2葉期となったときに前記実施例1および実施例7で得られた粒剤を500g/10aとなるように樋の片端の水面に投下した。

処理2週間後および4週間後に各雑草の生育抑制程度を肉眼で観察し、0（無処理区と同等）～100（完全枯殺）で評価した。調査地点は樋の片端から他端までを0.8m間隔で区分した。試験は2連制で実施し、その平均値をだした。処理2週間後の結果を表2に、処理4週間後の結果を表3に各々示した。

表2

実施例	雑草種	2週間後の抑草率 (%)				
		調査地点				
		0-0.8	0.8-1.6	1.6-2.4	2.4-3.2	3.2-4
1	ノビエ	99	99	98	92	78
	ホタルイ	85	88	90	85	83
	コナギ	99	97	99	97	95
	ウリカワ	85	83	88	85	85
7	ノビエ	97	98	97	90	80
	ホタルイ	85	90	85	85	85
	コナギ	99	99	99	99	99
	ウリカワ	85	90	90	85	85

表 3

実施例	雑草種	4週間後の抑草率 (%)				
		調査地点				
		0 - 0.8	0.8 - 1.6	1.6 - 2.4	2.4 - 3.2	3.2 - 4
1	ノビエ	99	99	99	75	50
	ホタルイ	93	93	95	88	70
	コナギ	100	100	98	95	65
	ウリカワ	93	93	93	93	80
7	ノビエ	99	99	95	95	85
	ホタルイ	90	95	95	90	85
	コナギ	100	100	100	99	99
	ウリカワ	95	95	95	90	90

試験例 3

縦0.54m×横0.84m×高さ0.1mのプラスチック製バットに土を詰め、入水し、代掻きをした後ノビエ、ホタルイ、コナギ、広葉雑草（ミゾハコベ及びアゼナ）の各種子を播種し、水深を3.5cmに保持した。ノビエが1～1.4葉期、ホタルイが0.5葉期、コナギが0.3葉期となった時期（広葉雑草は発生前）に、前記実施例22で得られた農薬組成物を所定量水面に投下した。

処理2週間後及び4週間後に各雑草の生育抑制程度を肉眼観察し、0（無処理区と同等）～100（完全枯殺）で評価した。調査地点は試験区を9等分し、左側の列を上から下へ1、2、3とし、中央の列を同様に4、5、6とし、右側の列を同様に7、8、9とした。試験は2連制で実施し、その平均値をだした。処理2週間後の結果を表4に、処理4週間後の結果を表5に各々示す。

表 4

薬量 g/10a	調査地点	2週間後の抑草率(%)			
		ノビエ	ホタルイ	コナギ	広葉雑草
500	1	97	98	100	100
	2	97	96	100	100
	3	95	97	100	100
	4	93	96	100	100
	5	95	95	100	100
	6	97	96	100	100
	7	97	96	100	99
	8	98	95	100	100
	9	96	95	100	100

表 5

薬量 g/10a	調査地点	4週間後の抑草率(%)			
		ノビエ	ホタルイ	コナギ	広葉雑草
500	1	99	99	100	100
	2	100	99	100	100
	3	98	100	100	100
	4	99	99	100	100
	5	99	99	100	100
	6	98	99	100	100
	7	97	99	100	99
	8	98	95	100	100
	9	98	99	100	100

試験例 4

縦0.15m×横4mの雨樋に土を詰め、入水し、代掻きをした後ノビエ、ホタルイ、コナギの各種子を播種し、水深を3.5cmに保持した。代掻き1日後にウリカワの塊茎を移植した。ノビエが1.2～1.3葉期、ホタルイが0.5～1.1葉期、コナギが1.3～2葉期、ウリカワが初生葉期～0.5葉期となった時期に、前記実施例22で得られた農薬組成物を所定量樋の片端の水面に投下した。

処理2週間後及び4週間後に各雑草の生育抑制程度を肉眼観察し、0(無処理区と同等)～100(完全枯殺)で評価した。調査地点は樋の片端から他端までを0.8m間隔で区分した。処理2週間後の結果を表6に、処理4週間後の結果を表7に各々示す。

表6

葉量 g/10a	雑草種	2週間後の抑草率(%)				
		調査地点				
		0-0.8	0.8-1.6	1.6-2.4	2.4-3.2	3.2-4
500	ノビエ	98	90	90	90	85
	ホタルイ	98	90	90	90	90
	コナギ	100	99	99	100	99
	ウリカワ	98	95	95	95	90

表7

薬量 g/10a	雑草種	4週間後の抑草率 (%)				
		調査地点				
		0-0.8	0.8-1.6	1.6-2.4	2.4-3.2	3.2-4
500	ノビエ	98	95	95	95	85
	ホタルイ	98	99	98	98	98
	コナギ	100	100	100	100	100
	ウリカワ	99	99	99	98	98

試験例5

前記実施例30～32の錠剤をアルミラミネート包装袋に入れ、ヒートシールした後、60℃で1週間の加速試験、50℃で1ヶ月の加速試験に各々供し、農薬活性成分の経時安定性(分解率)及び袋の膨張程度について確認した。経時安定性(分解率)の結果を表8に、袋の膨張程度の結果を表9に各々示す。

表8

実施例	ベンズルフロメチルの分解率	
	60℃、1週間	50℃、1ヶ月
30	4.2	4.1
31	7.9	6.0
32	8.7	6.8

表9

実施例	袋の膨張(肉眼観察)	
	60℃、1週間	50℃、1ヶ月
30	－～＋	－～＋
31	＋	＋
32	＋	＋

－：膨張なし

＋：膨張しているか否か判別できない程度

++：明らかに膨張が認められる

+++：破裂する程度の膨張が認められる

試験例6

1アール(10m×10m)の水田圃場の中心部に、前記実施例で得られた農薬組成物を投入し、浮遊性、発泡性、発泡時間及び処理痕について表10の結果を、処理後30日目の除草効果及び葉害について表11の結果を各々得た。なお、該水田圃場内に薬剤無処理区を設け除草効果の比較区としたが、対象雑草(ノビエ、コナギ及びホタルイ)の発生はいずれも旺盛であった。

(1) 浮遊性

○：投入後、水面に浮遊する

△：投入後、水底に沈下し、やがて浮遊する

×：投入後、水面に沈下し、浮遊しない

(2) 発泡性

○：投入後、発泡する

×：投入後、発泡しない

(3) 処理痕

無：処理痕なし

中：処理痕僅かにあり

大：処理痕あり

(4) 圃場の四隅における除草効果

0：なし～10：完全枯死

(5) 圃場の中央部におけるイネの薬害

0：なし～10：枯死

表10

実施例	浮遊性	発泡性	発泡時間(分)	処理痕(30分後)
38	○	○	4	無
39	○	○	4	無

表11

実施例	施用 個数	中央部 の薬害	四隅の効果		
			ノビエ	コナギ	ホタルイ
38	2個	0	10	10	10
39	1個	0	10	10	10

産業上の利用可能性

本発明の農薬組成物は、田水中に沈むことなく浮遊し、崩壊剤を含有する場合には崩壊剤によって農薬組成物が崩壊し、界面活性剤によって農薬活性成分が広範囲にわたって拡散するので、局所散布するだけで農薬活性成分が局所に残留することなく水田全域に拡散し、イネに対する薬害を発生することなく有害生物を防除することができ、散布作業が大幅に省力化される。また、優れた浮遊性を持った本発明の農薬組成物は、薬剤の処理地点付近にその痕跡や農薬活性成分が残らない。さらに本発明の農薬組成物は、簡便な方法で製造でき、特別な施設を要する高圧での圧縮成型を必要としないので、製造コストも低く抑えられる。この

ように、本発明の農薬組成物は、極めて実用性の高いものである。

本発明は、前述の説明及び実施例・試験例に特に記載した以外も、実行できることは明らかである。上述の教示に鑑みて、本発明の多くの改変及び変形が可能であり、従ってそれらも本件添付の請求の範囲の範囲内のものである。本出願は日本で出願された平成11年特許願第2008号（出願日：1999年1月7日）、平成11年特許願第180342号（出願日：1999年6月25日）、平成11年特許願第186556号（出願日：1999年6月30日）、平成11年特許願第267331号（出願日：1999年9月21日）及び平成11年特許願第273616号（出願日：1999年9月28日）を基礎としており、その内容はそれらを参照することにより本明細書にすべて含まれるものである。

請求の範囲

1. 農薬活性成分、界面活性剤に、更に、(1)炭酸塩及び固体酸を含有する組成物中に気泡及び／又は凹部を有するか、(2)嵩比重が1未満の閉鎖型中空体を含有するか、又は(3)嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有することを特徴とする水田用水面浮遊性農薬組成物。

2. 農薬活性成分、界面活性剤、炭酸塩及び固体酸を含有する組成物中に気泡及び／又は凹部を有することを特徴とする請求項1記載の農薬組成物。

3. 農薬活性成分、界面活性剤及び嵩比重が1未満の閉鎖型中空体を含有することを特徴とする請求項1記載の農薬組成物。

4. 農薬活性成分、界面活性剤及び嵩比重が1未満の閉鎖型中空体を含有することを特徴とする請求項1または3記載の水田用水面浮遊性粒状農薬組成物。

5. 農薬活性成分、界面活性剤、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有し、密度が 1 g/cm^3 未満であることを特徴とする請求項1記載の農薬組成物。

6. 農薬活性成分、界面活性剤、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有し、密度が 1 g/cm^3 未満であることを特徴とする請求項1または5記載の水田用水面浮遊性錠剤農薬組成物。

7. 水溶性フィルムで覆われた請求項1、2、3、4、5または6記載の農薬組成物。

8. 嵩比重が1未満の閉鎖型中空体が、セラミック製である請求項1、3

、4、5または6記載の農薬組成物。

9. 農薬活性成分が、除草剤の有効成分である請求項1、2、3、4、5、6、7または8記載の農薬組成物。

10. 安定化剤を含有する請求項1、2、3、4、5、6、7、8または9記載の農薬組成物。

11. 崩壊剤が炭酸塩及び固体酸である請求項1、5または6記載の農薬組成物。

12. 農薬活性成分、界面活性剤に、更に、(1)炭酸塩及び固体酸を含有する組成物中に気泡及び／又は凹部を有するか、(2)嵩比重が1未満の閉鎖型中空体を含有するか、又は(3)嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有する水田用水面浮遊性農薬組成物を、湛水下水田に直接施用する方法。

13. 農薬活性成分、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、および界面活性剤より成る水田用水面浮遊性粒状農薬組成物を、湛水下水田に直接施用する請求項12記載の方法。

14. 農薬活性成分、界面活性剤、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有し、密度が 1 g/cm^3 未満である水田用水面浮遊性錠剤農薬組成物を、湛水下水田に直接施用する請求項12記載の方法。

15. 農薬活性成分、界面活性剤、嵩比重が1未満の閉鎖型中空体、結合剤及び崩壊剤を含有し、密度が 1 g/cm^3 未満である水田用水面浮遊性錠剤農薬組成物の製造方法であって、錠剤化時の錠剤化機器による加圧度が $1\sim 150\text{ kg/cm}^2$ であることを特徴とする方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/07341

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ A01N25/12, 25/34, 25/16, 25/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ A01N25/12, 25/34, 25/16, 25/00, 25/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CAPLUS (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X,Y	JP, 9-249504, A (NIHON NOHYAKU CO., LTD.), 22 September, 1997 (22.09.97) & KR, 97-64371, A	1,3-15
X,Y	JP, 10-109905, A (KUMIAI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.), 28 April, 1998 (28.04.98) (Family: none)	1,3-15
X,Y	JP, 8-99803, A (SANKYO COMPANY, LIMITED), 16 April, 1996 (16.04.96) & CN, 1123082, A	1,3-15
X,Y	JP, 8-99802, A (SANKYO COMPANY, LIMITED), 16 April, 1996 (16.04.96) & CN, 1126543, A	1,3-15
Y	JP, 7-233002, A (Takeda Chemical Industries, Ltd.), 05 September, 1995 (05.09.95), Claims; Par. No. [0020] (Family: none)	1,3-15
X,Y	JP, 7-82102, A (Mitsui Toatsu Chemicals Inc.), 28 March, 1995 (28.03.95) (Family: none)	1,3-15

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
13 March, 2000 (13.03.00)Date of mailing of the international search report
04 April, 2000 (04.04.00)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/07341

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X,Y	JP, 6-293603, A (Sumitomo Chemical Company, Limited), 21 October, 1994 (21.10.94) (Family: none)	1,2,7,9-12
Y	JP, 6-56604, A (HODOGAYA CHEMICAL CO., LTD.), 01 March, 1994 (01.03.94), Claims; Par. Nos. [0035]-[0038] (Family: none)	10,15
Y	JP, 7-2602, A (Japan Carlit Co., Ltd.), 06 January, 1995 (06.01.95), Claims; Par. No. [0016] (Family: none)	10

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP99/07341

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl ⁷ A01N25/12, 25/34, 25/16, 25/00		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl ⁷ A01N25/12, 25/34, 25/16, 25/00, 25/08		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CAPLUS (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X, Y	JP, 9-249504, A (日本農薬株式会社) 22. 9月. 1997 (22. 09. 97) & KR, 97-64371, A	1, 3-15
X, Y	JP, 10-109905, A (クミアイ化学工業株式会社) 2 8. 4月. 1998 (28. 04. 98) (ファミリーなし)	1, 3-15
X, Y	JP, 8-99803, A (三共株式会社) 16. 4月. 199 6 (16. 04. 96) & CN, 1123082, A	1, 3-15
X, Y	JP, 8-99802, A (三共株式会社) 16. 4月. 199 6 (16. 04. 96) & CN, 1126543, A	1, 3-15
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		
の日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 13. 03. 00	国際調査報告の発送日 04.04.00	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 穴 吹 智 子	4H 8413
	電話番号 03-3581-1101	内線 6820

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 7-233002, A (武田薬品工業株式会社) 5. 9 月. 1995 (05. 09. 95), 特許請求の範囲; 段落番号0 020 (ファミリーなし)	1, 3-15
X, Y	J P, 7-82102, A (三井東圧化学株式会社) 28. 3 月. 1995 (28. 03. 95) (ファミリーなし)	1, 3-15
X, Y	J P, 6-293603, A (住友化学工業株式会社) 21. 1 0月. 1994 (21. 10. 94) (ファミリーなし)	1, 2, 7, 9-12
Y	J P, 6-56604, A (保土谷化学工業株式会社) 1. 3 月. 1994 (01. 03. 94), 特許請求の範囲; 段落番号0 035~0038 (ファミリーなし)	10, 15
Y	J P, 7-2602, A (日本カーリット株式会社) 6. 1月. 1995 (06. 01. 95), 特許請求の範囲; 段落番号001 6 (ファミリーなし)	10

THIS PAGE BLANK (USPTO)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)